

submit along with the Declaration were not received by the USPTO. On October 21, 2002, Applicants sent copies of the invention reports to the Examiner via facsimile. In a November 26, 2002, telephone conversation between the Examiner and the undersigned, the Examiner indicated that, upon a preliminary review, the invention reports supported the submitted Declaration. The Examiner told the undersigned that he would further consider the Declaration, including the invention reports, if formally submitted to the USPTO. Applicants herein resubmit the 1.131 Declaration, along with the invention reports, for further consideration by the Examiner. Applicants further rely on the arguments set forth, in conjunction with the Declaration, in the June 14, 2002, Amendment. Applicants respectfully submit that the rejection based on the Tsai et al. reference has been overcome and that the claims are in condition for allowance.

Further in the August 2, 2002, Office Action, the Examiner continued to object to the amendment to the specification, which was made to clarify the translation of the paragraph bridging pages 36 and 37. Specifically, the specification has been amended to clarify that the Bionolle #1020 had 30% talc added to it and is not itself a talc-containing powder, as purchased. The Examiner has objected to the correction, stating that "substantial evidence" is required to demonstrate that Applicant's Bionolle #1020 is not a talc-containing powder, and therefore does not introduce new matter into the disclosure. Applicants herein submit an English translation of selected passages of "TECHNICAL DATA SHEET" – Bionelle, Biodegradable Plastics (1991) issued by Showa Highpolymer Co., Ltd., which establishes that Bionelle #1020 is an aliphatic polyester chemically synthesized mainly from glycol and aliphatic dicarboxylic acid, and is not a talc-containing powder.

FINNEGAN  
HENDERSON  
FARABOW  
GARRETT &  
DUNNER LLP

1300 I Street, NW  
Washington, DC 20005  
202.408.4000  
Fax 202.408.4400  
www.finnegan.com

Moreover, MPEP § 2163.07 states, "An amendment to correct an obvious error does not constitute new matter where one skilled in the art would not only recognize the existence of error in the specification, but also the appropriate correction." Additionally, the Federal Circuit has held that correcting a mere error in translation of the disclosure is not necessarily introduction of new matter. In re Oda, 443 F.2d 1200 (Fed. Cir. 1971) (holding that accidentally translating "nitric" to "nitrous" in the specification of a Japanese disclosure that had been translated to English was not the introduction of new matter). The court also summarized the state of the law as follows:

Amendments purporting to correct errors or to supply omissions in features which are essential to the operativeness of the invention or the completeness of the disclosure are permissible, if the errors are manifest and were caused by a clerical mistake of the draftsmen or unfamiliarity of the inventor with official forms and the proposed corrections do not change the essence of the invention.

Oda, 443 F.2d at 1204.

The specification at issue never intended to assert that the Bionolle #1020 was purchased containing talc, as this did not properly reflect what the inventors believed the application to say. Accordingly, Applicants reiterate that no new matter has been introduced as the amendment was merely the correction of an obvious translational error.

### **CONCLUSION**

In view of the foregoing remarks, Applicants respectfully request the reconsideration and reexamination of this application and the timely allowance of the pending claims.

FINNEGAN  
HENDERSON  
FARABOW  
GARRETT &  
DUNNER LLP

1300 I Street, NW  
Washington, DC 20005  
202.408.4000  
Fax 202.408.4400  
www.finnegan.com

Please grant any extensions of time required to enter this response and charge any additional required fees to our Deposit Account 06-0916.

Respectfully submitted,

FINNEGAN, HENDERSON, FARABOW,  
GARRETT & DUNNER, L.L.P.

Dated: December 2, 2002

By: 

Barry D. Biddle  
Reg. No. 44,033

FINNEGAN  
HENDERSON  
FARABOW  
GARRETT &  
DUNNER LLP

1300 I Street, NW  
Washington, DC 20005  
202.408.4000  
Fax 202.408.4400  
www.finnegan.com

# TECHNICAL DATA SHEET

 昭和高分子株式会社  
SHOWA HIGHPOLYMER CO., LTD.  
〒101 東京都千代田区神田錦町3-20

## ビオノーレ® 生分解性プラスチック(グリーンプラ)

### 概要

○ビオノーレは、木や紙のように空気中の乾燥状態では安定していますが、堆肥中・湿った土中・活性汚泥中・淡水中・海水中で生分解し、最終的には炭酸ガスと水になる生分解性樹脂です（これらの生分解性の速度は、ビオノーレのタイプと環境条件によって、早い遅いがあります）。

○ビオノーレは、燃焼熱がポリエチレンの約半分と小さく、ハロゲンや有毒ガスを発生しませんので、焼却炉への負担を少なく処分できると期待されます。

### 性状

○ビオノーレは、汎用ポリオレフィンに類似した優れた成形加工性を持ち、その物性は汎用ポリオレフィンとほぼ同等です。

○ビオノーレは、水と常温で通常の有機溶剤に溶けません（特定のハロゲン化炭化水素にのみ溶けます）。

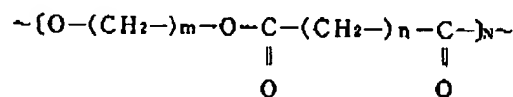
○ビオノーレは、成形加工時に不快な臭いを発生しませんし、成形品も臭いません。

### 構造

○ビオノーレは、主にグリコールと脂肪族ジカルボン酸とから化学合成された脂肪族ポリエステルです。

○ビオノーレの主たる構造単位は、右記に示されます。

ビオノーレは、構造単位の分子設計が比較的自由ですが、現時点で代表的なものは、Polybutylene succinate（略称PBS）とアジピン酸との共重合体です（略称PBSA）。



（ビオノーレの物性例）

タイプ	#1000	#3000
MFR (g/10min)	1~3	約6 : 約20
融点 (°C)	114	95
密度 (g/cm³)	1.26	1.23
降伏強度 (kg/cm²)	336	190
曲げ弾性率 (kg/cm²)	6500	3500
アイゾット (kg-cm/cm)		
衝撃値 -20°C	30	35
-20°C	2.4	3
燃焼熱 (cal/g)	5700	5800
生分解速度		
加熱堆肥中	○	◎
湿った土中	○	◎
活性汚泥中	△	○
海水中	○	◎

注1) 生分解性 ◎：早い ○：標準 △：やや遅い

注2) 表中の数値は保証値ではありません。

### 製品構成

○タイプ#1000は  $m=4$ 、 $n=2$

タイプ#3000は  $m=4$ 、 $n=2,4$

## 特 性

### (1)成形加工および成形品

- 汎用ポリオレフィンの成形機で成形できます。成形機の樹脂置換は、融点とMFRが類似したLDPEで洗浄して下さい。
- ビオノーレは、平衡吸水率が約0.4重量%ですので、一旦開封した場合には成形加工前に乾燥(80°C×3hrs)することが必要です。
- ビオノーレは、通常170～220°Cにて成形できますが、管理された条件下では150～250°Cでも可能です。
- ビオノーレは、インフレーション・フィルム成形が可能で、またヒートシールも優れています。
- フィルムは、強度が強く、衝撃強度も優れております。

### (2)生分解性試験の例

- ビオノーレは、現在系統的な生分解性試験を実施中です。ビオノーレは、タイプと生分解試験条件によってその生分解速度は大巾に変動します。しかしながら、ビオノーレは、遅かれ早かれ全グレードが生分解によって消滅します。
- ビオノーレの生分解速度は、一般に堆肥中および湿った土中では、≒3000グレードがより早いと観測されております。



写真1. ビオノーレのペレットおよび成形品



写真2. シャンプー・ボトル(各1000)の土中生分解性試験の例(左より夏期1, 2および4ヶ月後、地下100cm)

## 用 途

- 生活関連(堆肥用生ゴミ袋、運動性用途、衛生用品)
- 包装材料(各種フィルム、バンド、テープ、緩衝材)
- 農業、植生、林業(農業用フィルム、植生ネット、法面工事用)
- 漁業、マリンレジャー(釣り糸、釣餌袋、漁網)

(お問い合わせ) 昭和高分子株式会社・昭和電工株式会社 ビオノーレプロジェクト  
〒101 東京都千代田区神田錦町3-20(神田中央ビル) 昭和電分子・本社3階  
TEL. (03) 3293-8411 FAX. (03) 3293-8995

(96.5改訂)

-1-

CONFIDENTIAL

## REPORT ON INVENTION/UTILITY MODEL

YKK CORPORATION

I.P.	Kind	P.U.D.TD	KEYWORD	R94
Dept.	N.HKT NO.	E97195	O.HKT.NO.	E9037D
			FILE NO.	97-

Date of Report: October 31, 1997

Title	FORMED ARTICLE OF BIODEGRADABLE RESIN				
	Belonging to	Extension	Name	Employee's Number	Address
Inventors	Research & Develop. Division	3541	Yoshifumi MIYAJIMA	9630046	YKK CORP. Hakukoryo A-209 4018, Mikkeichi, Kurobe-shi, Toyama-ken
	Fastening Products Division	2609	Mutsuo HIROTA	7630020	200, Kusano, Asahi-machi, Shimoniikawa-gun, Toyama-ken
	Research & Develop. Division	3541	Mamoru TANAKA	7330023	4210-54, Nyuzen, Nyuzen-machi, Shimoniikawa-gun, Toyama-ken
	Research & Develop. Division	3541	Akira ISHIBASHI	8031009	1-6-24, Suzukakedai, Yoneda, Toyama-shi, Toyama-ken

-2-

[SUMMARY]

[Title of the Invention]

FORMED ARTICLE OF BIODEGRADABLE RESIN

[Object]

An object is to provide a formed article which exhibits functional characteristics on a par with an existing synthetic resin when put into practical use and has such biodegradable properties that, when discarded after use, it succumbs to decomposition by the action of microorganisms occurring in the physical world.

[Constitution]

There is provided a formed article of a biodegradable resin which is formed of a multicomponent polymer material comprising a continuous phase and a disperse phase, characterized by the fact that it has a three-component system comprising the continuous phase consisting of an inorganic filler-containing biodegradable resin and the disperse phase consisting of a biodegradable resin which is different from that of the continuous phase.

-3-

[Name of Document]

SPECIFICATION

[Title of the Invention]

FORMED ARTICLE OF BIODEGRADABLE RESIN

[Scope of Claim for Patent]

[Claim 1]

A formed article made of a biodegradable resin which is formed of a multicomponent polymer material comprising a continuous phase and a disperse phase, characterized in that it has a three-component system comprising the continuous phase consisting of an inorganic filler-containing biodegradable resin and the disperse phase consisting of a biodegradable resin which is different from that of the continuous phase.

[Claim 2]

The formed article according to claim 1, characterized in that the continuous phase is a polybutylene succinate, the inorganic filler contained in the continuous phase is talc or calcium carbonate, and the disperse phase is a polylactic acid.

[Claim 3]

The formed article according to claim 1 or 2, characterized in that the disperse phase component accounts for a proportion in the range of 5 to 45% based on the total weight of the formed article.

[Claim 4]

The formed article according to claims 1, 2 and 3, wherein the formed article is a slide fastener.

[Claim 5]

The formed article according to claims 1, 2 and 3, wherein the formed article is a separable fastener.

[Detailed Description of the Invention]



-4-

[Field of Industrial Application]

This invention relates to a formed article made of a material comprising three components, two kinds of biodegradable resins which have biodegradable functional characteristics and an inorganic filler discharging the role of a reinforcing material for these biodegradable resins. The present invention relates particularly to formed articles for fasteners which are fabricated by injection molding or extrusion molding.

[Prior Art]

The products of synthetic resin in use to date, owing to the outstanding features thereof such as light weight, low price, and easy workability, have infiltrated into every area of our daily life and now constitute themselves indispensable raw materials in the modern economic society. These products of synthetic resin, however, entail such problems of public nuisance as, for example, destruction and pollution of natural environment when they are discarded after use because they are suffered to persist in their undecomposed state and accumulate in the natural environment.

In the circumstances, the idea of incorporating the resin products into the mass circulation of the natural world, namely the plan for ultimately decomposing resin products into water and carbon dioxide by the use of microorganisms which are present in the physical world, has come to be contemplated. As a result, the development of various biodegradable resins which are novel materials possessed of "biodegradability" is now under way.

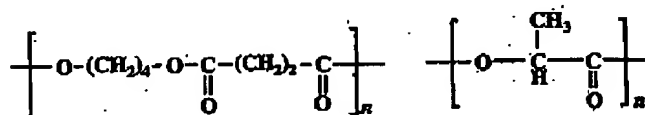
Of the biodegradable resins which are cited herein by way of illustration of actual use, a polybutylene succinate is an aliphatic polyester which is chemically synthesized mainly from glycol and

-5-

an aliphatic dicarboxylic acid. A polylactic acid is chemically synthesized by using L-lactic acid as a monomer. Their main chemical structural formulas are represented by the following [Formula 1] and [Formula 2], respectively.

[Formula 1]

[Formula 2]



As regards the polybutylene succinate, the biodegradable resin "Bionolle" using this compound as a main component has been already marketed. The "TECHNICAL DATA SHEET, Bionolle, Biodegradable Plastic (1996)" issued by Showa Highpolymer Co., Ltd., the producer of this biodegradable resin, offers such information as the outline, attributes, and structure thereof. As regards the polylactic acid, the biodegradable resin "LACT" using polylactic acid as a main component has been already marketed. The "SHIMADZU LACT Report - Lactic Acid Type Biodegradable Plastic No. 1 LACT" issued by Shimadzu Seisakusho K.K., the producer of this biodegradable resin, offers such information as the structure, attributes, and mechanical properties thereof.

While these biodegradable resins are as stable in the air as wood and paper, they succumb to biodegradation in compost, wet soil, activated sludge, fresh water, and seawater and ultimately yield to decomposition into water and carbon dioxide. With respect to an inorganic filler contained in a continuous phase, since an inorganic compound occurring in the physical world is selected as the inorganic filler, the effect which the inorganic filler in the formed article exerts on the physical world when the formed article is discarded after use is thought to be relatively small.

-6-

Though the cases of successful adaptation of these bi degradable resins for practical use are still few in number, the products which use such biodegradable resins as have only a light load on the physical environment have begun to appear as alternatives for the existing products of synthetic resin.

[Problems to be solved by the Invention]

The use of such biodegradable resins as mentioned above in actual products, however, incurs a heap of problems on strength and moldability which remain yet to be solved. Unfortunately, none of the biodegradable resins which have been already introduced to the market satisfies all these requirements.

The present invention, with a view to imparting to a biodegradable resin such strength as fully suffices effective use of the resin as in fasteners, for example, consists in compounding two different kinds of biodegradable resin materials and an inorganic filler to make a three-component system, thereby compensating these biodegradable resins severally for their defects and deriving good qualities from the physical properties of the individual resin materials.

[Means for solving the Problems]

The present inventors, after continuing a diligent study to solve the problems mentioned above, have discovered an unexpected fact that the three-component system to be obtained by causing the continuous phase of biodegradable resin containing an inorganic filler to incorporate therein a small amount of another biodegradable resin destined to form a disperse phase can acquire a marked addition to the "elongation" which brings about a great effect on the mechanical strength of material. The present invention has been perfected based on the above discovery.

Specifically, the present invention resides in providing a formed article of biodegradable resin excellent in strength by preparing a biodegradable resin abounding in expansibility by such means as mentioned above and using this resin as the raw material.

Now, the basis of the present invention will be explained below. The biodegradable resin used in the present invention is not limited to a polybutylene succinate and a polylactic acid. Any known resin having biodegradable functional characteristics may be used without any particular restriction. An inorganic filler is used as a component of the formed article. In the present invention, any known inorganic filler may be used without any particular restriction. The inorganic filler does not need to be limited to talc and calcium carbonate.

The materials used here were a talc-containing polybutylen succinate for the continuous phase of an inorganic filler-containing biodegradable resin on the one hand and a polylactic acid, a biodegradable resin, for the disperse phase on the other hand. When the talc-containing polybutylene succinate and the polylactic acid are used independently of each other, they both exhibit only small elongations (Table 1).

[Table 1]

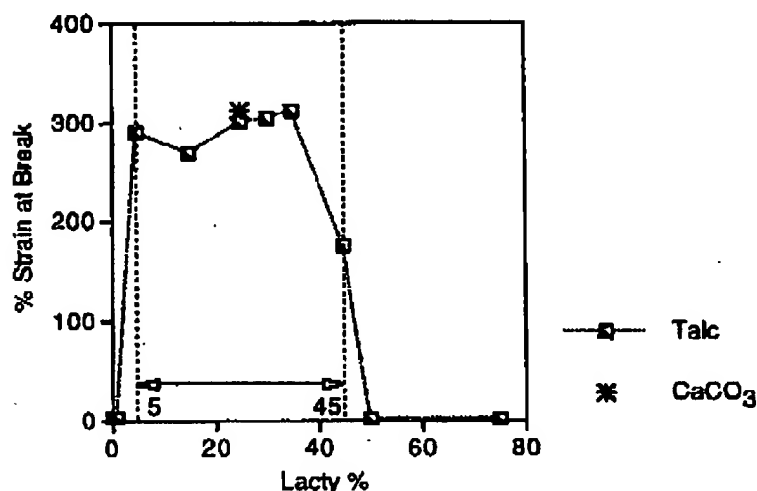
Biodegradable resin	Elongation(%)
Polybutylene succinate containing 30% of talc	6.4
Polylactic acid	1.0

Incidentally, by using the talc-containing polybutylene succinate for the continuous phase and meanwhile using the polylactic acid for the disperse phase and then kneading these two components, a formed article of biodegradable resin which exhibits an elongation

-8-

approximating closely to 300% can be provided. Practically, resins composed of inorganic filler-containing polybutylene succinate/polylactic acid in varying mixing ratios were prepared and examined for physical properties. [Fig. 1]

[Fig. 1]

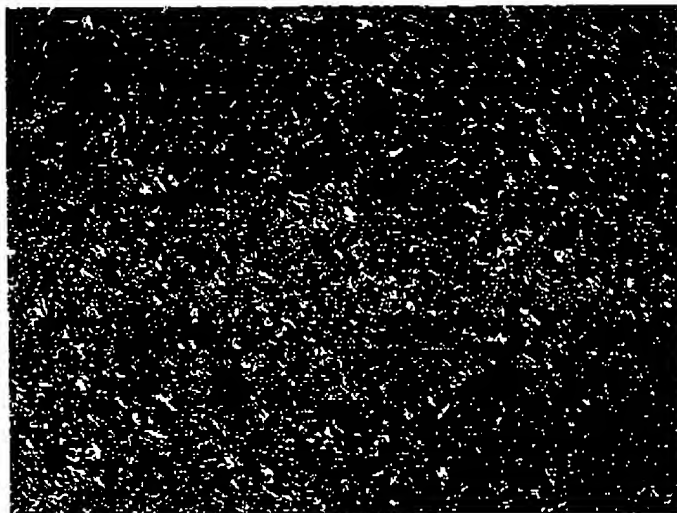


It is noted clearly from the results shown in [Fig. 1] that the elongation during the tensile test depends largely on the mixing ratio of the two resins, namely the talc-containing polybutylene succinate and the polylactic acid. Generally, in the multicomponent polymer material, it is known that when the components of the material are mixed, the component of the largest amount forms a continuous phase and the component of the smallest amount forms a disperse phase. The results in the case mentioned above also seem to indicate that at the mixing ratio at which the greater elongation is observed, the talc-containing polybutylene succinate forms the continuous phase and the polylactic acid forms the disperse phase. It can be understood that when the samples of resin material are actually observed under an optical microscope to test for the state of dispersion, the talc-containing polybutylene succinate is found to

-9-

from the continuous phase and the polylactic acid the disperse phase (Fig. 2).

[Fig. 2]



The results described above indicate that by using the talc-containing polybutylene succinate for the continuous phase and the polylactic acid for the disperse phase, namely by forming a three-phase structure having the particles of the polylactic acid dispersed in the talc-containing polybutylene succinate, the resultant formed product of biodegradable resin can be endowed with marked elongation. They further indicate that, for the sake of imparting functional characteristics mentioned above to the resin material, the biodegradable resin forming the disperse phase is preferred to account for a proportion in the range of 5 to 45%, based on the total weight of the formed article, so that the functional characteristics mentioned above can more powerfully appear.

The same effect can be obtained even when calcium carbonate is selected as the inorganic filler for the continuous phase. [Fig. 1]

- 10 -

As described above, the present invention solves the aforementioned problem that confronts it by producing the formed article of a multicomponent type biodegradable resin with a three-component dispersion system using an inorganic filler-containing biodegradable resin for the continuous phase and using for the disperse phase a biodegradable resin other than the resin for the continuous phase mentioned above, which constitute the formed article, for the purpose of improving the elongation which occupies an important position in the mechanical properties of material. More preferably, the polybutylene succinate is used for the continuous phase mentioned above, the polylactic acid is used for the disperse phase, and talc or calcium carbonate is used for the inorganic filler. For the sake of obtaining more favorable results, it suffices to use the polylactic acid destined to form the disperse phase under the conditions mentioned above in a proportion in the range of 5 to 45%, based on the total weight of the relevant formed article.

That is to say, the most significant characteristic feature of the present invention resides in the fact that the formed article of the multicomponent type biodegradable resin is formed from a three-component dispersion system containing an inorganic filler-containing biodegradable resin as the continuous phase and a biodegradable resin other than the resin for the continuous phase mentioned above dispersed therein as the disperse phase, preferably by using the polybutylene succinate for the continuous phase, the polylactic acid for the disperse phase, and talc or calcium carbonate for the inorganic filler, and more preferably by using the polylactic acid destined to form the disperse phase under the conditions mentioned above in a proportion in the range of 5 to 45%, based on the total weight of the relevant formed article. The formed article

- 11 -

can be improved in elongation and strength by using therefor the three-phase structure having the biodegradable resins mixed, particularly in such a ratio as mentioned above.

Any biodegradable resins, polybutylene succinate and polylactic acid, and any inorganic fillers, talc and calcium carbonate, produced by any known method may be used in the present invention without any particular restriction.

The formed article contemplated by the present invention is not discriminated on account of the particular method of production to be adopted. A method which may be cited as the most typical method for the production of a formed article of biodegradable resin comprises first preparatorily incorporating an inorganic filler endowed with compatibility by a surface treatment into polybutylene succinate, thoroughly kneading the two components together, then mixing the product of kneading with a polylactic acid at a proportion in the approximate range of 5 to 45%, based on the total weight of the mixture, kneading the components consequently joined at 190°C by the use of a kneading device, and then molding the kneaded resin with an injection molding device thereby obtaining a molded article of biodegradable resin characterized by comprising particles of the polyacetic acid as the disperse phase dispersed in the continuous phase of the talc-containing polybutylene succinate. That is to say, the present inventors have discovered that a formed article of biodegradable resin having higher strength is obtained easily with high reproducibility by kneading the talc-containing polybutylene succinate and the polylactic acid at a stated mixing ratio and then injection molding the kneaded resin. The kneading temperature does not need to be fixed at the magnitude mentioned above. The kneading which is performed at a temperature exceeding the melting points of the relevant resins suffices for the intended



- 12 -

purpose. Optionally, the kneading of the two resins may be effected by a method which avoids using a kneading device, namely a method which comprises mixing the two resins each in the shape of pellets prior to the step of molding.

[Examples]

Now, a working example is given below to describe the present invention more concretely. As a matter of course, the present invention is not limited to the following example.

[Example 1]

Commercially available biodegradable resins were used as the raw materials herein. In the present example, the talc-containing (30%) grade of the aliphatic polyester type biodegradable resin "Bionolle" #1020 made by Showa Highpolymer Co., Ltd. was used as talc-containing polybutylene succinate and the polylactic acid type biodegradable resin "LACT" #2012 made by Shimadzu Seisakusho K.K. was used as polylactic acid. First, the pellets of these resins were dried under a reduced pressure at 80°C for four hours. The dried pellets were severally processed by the dry blend method using an injection molding device to obtain injection molded slide fasteners, namely the molded fastener A which was formed solely of the talc 30%-containing grade of Bionolle and the molded fastener B which was formed of the talc 30%-containing grade of Bionolle/LACT at a mixing ratio of 80/20, i.e. Bionolle/talc/LACT at a mixing ratio of 56/24/20.

The resultant molded articles A and B were severally tested for lateral tensile strength. The results of the test are shown in [Table 2]. An outline of the method for measuring the lateral tensile strength is illustrated in [Fig. 3]. When the sample solely using the talc-containing Bionolle (molded article A) and the sample

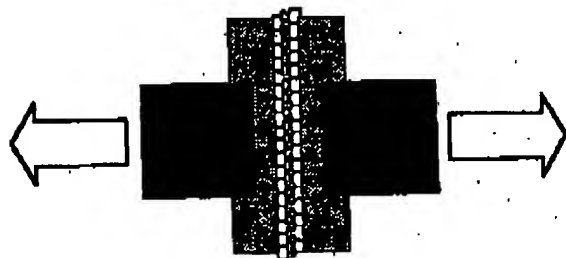
- 13 -

using the talc-containing Bionolle for the continuous phase and the LACT for the disperse phase (molded article B) as indicated in [Table 2] are compared, it is found that the fastener of the molded article B using the LACT for the disperse phase showed greater lateral tensile strength. The test results demonstrate the effect which was brought about in the increase of strength by the construction of a three-phase structure formed of the continuous phase of the inorganic filler-containing biodegradable resin and the disperse phase of the biodegradable resin.

[Table 2]

Molded Article	Composition	Lateral tensile Strength (kgf.25 mm <sup>-1</sup> )
A	Bionolle/talc = 70/30	29.7
B	Bionolle/talc/LACT = 56/24/20	35.9

[Fig. 3]



Rate of Pulling: 800 mm/min., Width of Clamp: 25 mm

[Brief Description of the Drawings]

[Fig. 1]

This figure shows the elongation exhibited by a resin material having a varying talc-containing polybutylene succinate/polylactic acid mixing ratio or a varying calcium carbonate-containing polybutylene succinate/polylactic acid mixing ratio. The abscissa axis is the scale of the proportion in % by weight of the polylactic acid to the total weight of the mixed resin material containing the inorganic filler and the ordinate axis is the scale of the elongation

-14-

in % strain. The part enclosed with a dotted line in the diagram (the mixing ratio of LACT ranging from 5 through 45%) represents a recommended range. The distance between two gage marks on a test piece used in the measurement of elongation was 50 mm.

[Fig. 2]

This figure shows a polarized photomicrograph of the cross section of a monofilament having a talc-containing polybutylene succinate/polylactic acid mixing ratio of 75/25. The cross section was photographed by using a quarter-wave plate under the condition of cross Nichol. The purple part of the diagram represents the polybutylene succinate component, the orange-colored part represents the polylactic acid component, and the blue or bluish white portion represents talc.

[Fig. 3]

This figure shows the specification for determining the lateral tensile strength in Example 1. With fastener stringers so held as to keep coupling elements in a meshed state, fastener tapes were drawn by the use of a tensile tester at a fixed rate (300 mm/min.) in the direction of engagement of the stringers as illustrated in the diagram to test for tensile resistance. Clamps had a width of 25 mm.

秘

## 発明・考案届出書



YKK株式会社

知財	種別	P・U・D・TD	KEYWORD	R94
	N.HKT.NO.	H7135	O.HKT.NO.	E90270
			FILE NO.	97-1

97年 10月 31日提出

発明・考案者 署名欄	名称	生分解性樹脂成形品				
	所属	内線	氏名(フリガナ)	従業員番号	住所(フリガナ、番地まで正確に)	
	研究開発本部 樹脂技術センター	3541 15000	宮島 吉史	9630046 15012	トヤマケンタロウベジタブル加工株式会社 富山県富山市三日月 4018 YKK(株) 白地線 A-209	
	ファスニング事業本部 樹脂技術センター	2609 11051	広田 健夫	7630020 11051	トヤマケンタロウベジタブル加工株式会社 富山県下新川郡明日町車好 200	
	研究開発本部 樹脂技術センター	3541 15000	田中 守	7330023	トヤマケンタロウベジタブル加工株式会社 富山県下新川郡入善町入善 4210-54	
	研究開発本部 樹脂技術センター	3541 15000	石橋 亮	8031009	トヤマケンタロウベジタブル加工株式会社 富山県富山市米田すずかけ台 1-6-24	
実施予定 該当項目に○印 をつけて下さい	1. 有 (イ) 販売又は出荷予定 (いつ: 年 月 日頃) (ロ) サンプル出荷予定 (いつ: 年 月 日頃) (ハ) 外注有り (いつ: 年 月 日頃) (どこへ: ) ② 将来可能性有り 3. 無 (アイデアのみ)					
	公表予定 該当項目に○印 をつけて下さい	1. 学会発表の予定 (有・無) 予定日 ( 年 月 日) 2. 業者との打合せ予定 (有・無) 予定日 ( 年 月 日) 3. 印刷物発行の予定 (有・無) 予定日 ( 年 月 日) 4. 社外展示予定 (有・無) 予定日 ( 年 月 日) 5. 社内発表予定 (有・無) 予定日 ( 年 月 日)				
		他社との関係 他社と共同出願にする必要性 (有・無) (会社名: )				
		ユースト開発番号		事業本部開発番号		
		図 番		関連製品名・関連部品名		
図 番		関連装置名・関連ユニット名				
所 属 部 長 入 欄	出願の目的	1. 非特許的独占権を確保したい。 2. 技術を公開することで他者の類似技術の権利化を阻止したい。(公開技術の活用) 3. ノウハウとして保護したいが、他者の権利化は阻止したい。(公開前に放棄) 但し、この手段は日本だけの独特なものです。 4. その他の目的があれば具体的に記入下さい。(ex.海外に対するライセンス・営業政策上など) (具体的に: )				
	出願形態	1. 特許 2. 実用新案 3. 意匠 4. 公開技術 5. その他 ( )				
	出願内容の重要度	A. 最重要 B. 重要 C. 普通 (※チェックシートを活用下さい。)				
	費用責任事業部	F. ファスニング B. 建材製造 M. 工機 R. 研究開発 C. ユースト				
出願の緊急度	1. 普通 2. 急ぐ ( 年 月 日頃)					
知財	受付日	97.11.7	受付者	安永	担当	白田
	種別	F	ランク	C		

**【要旨】****【発明の名称】**

生分解性樹脂成形品

**【目的】**

通常使用時は既存の合成樹脂と同等の機能を有するが、廃棄すると自然界に存在する微生物の働きによって分解されるという生分解性を有する成形品を提供する。

**【構成】**

連続相および分散相からなる多成分系高分子材料において、連続相として、無機充填剤を含有する生分解性樹脂を、分散相として、連続相と異なる生分解性樹脂を分散させた、これら三成分系から成ることを特徴とする生分解性樹脂成形品を提供するものである。

**【書類名】**

明細書

**【発明の名称】**

生分解性樹脂成形品

**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

連続相および分散相からなる多成分系高分子材料において、連続相として、無機充填剤を含有する生分解性樹脂を、分散相として、連続相と異なる生分解性樹脂を分散させた、これら三成分系から構成されることを特徴とする生分解性樹脂成形品。

**【請求項 2】**

連続相をポリブチレンサクシネート (Polybutylenesuccinate)、連続相に含まれる無機充填剤をタルク (Talc) または炭酸カルシウム (Calcium carbonate)、分散相としてポリ乳酸 (Polylactic acid) を使用することを特徴とする請求項 1 記載の成形品。

**【請求項 3】**

分散相成分の占める割合が、成形品全重量に対して 5-45%であることを特徴とする請求項 1 および 2 記載の成形品

**【請求項 4】**

成形品がスライドファスナーである請求項 1、2 および 3 記載の成形品。

**【請求項 5】**

成形品が面ファスナーである請求項 1、2 および 3 記載の成形品。

**【発明の詳細な説明】****【産業上の利用分野】**

本発明は、生分解機能を有する二種類の生分解性樹脂、並びにこれら生分解性樹脂の補強材的役割を担う無機充填剤の三成分からなる成形品に関するものである。特に、ファスナー製品に関して、射出成形および押し出し成形により加工される成形品に関する。

**【従来の技術】**

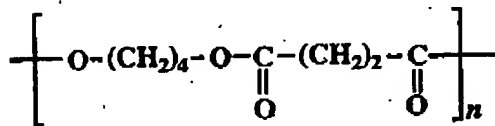
従来より使用される合成樹脂製品は、軽量かつ安価で加工が容易であることから、国民生活のあらゆる領域に浸透し、現代の経済社会には必要不可欠な材料になっている。しかしながら、それら合成樹脂製品は、利用後、廃棄されるとそのままの形で分解することなく自然環境中に蓄積され、自然環境の破壊や汚染といった公害問題を引き起こしつつある。

このような状況の中、樹脂製品を自然界の物質循環に組み込むという思想、すなわち、自然界に存在する微生物を利用することにより、樹脂製品を最終的に水と二酸化炭素に

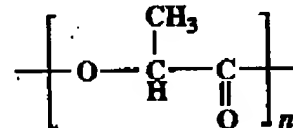
分解する方策が考えられるようになり、その結果として、「生分解性」を有する新規な材料である生分解性樹脂が考案された。

今回使用例として例示する生分解性樹脂のうち、ポリブチレンサクシネートは、主としてグリコールと脂肪族ジカルボン酸とより化学的に合成される脂肪族ポリエステルであり、また、ポリ乳酸はL-乳酸を単量体として化学合成される。その主たる化学構造式を【化1】および【化2】にそれぞれ示す。

【化1】



【化2】



このうち、ポリブチレンサクシネートについては、これを主成分とする生分解性樹脂「ピオノーレ」が既に上市されており、製造元である昭和高分子(株)の発行する「TECHNICAL DATA SHEET、ピオノーレ・生分解性プラスチック(1996)」にその概要、性状および構造などが示されている。また、ポリ乳酸についても、これを主成分とする生分解性樹脂「ラクティ」が既に上市されており、その製造元である(株)島津製作所から発行される「SHIMADZU LACT Report - 乳酸系生分解性プラスチック No. 1 ラクティ」に、その構造、性状および機械的特性などについて述べられている。

これら生分解性樹脂は、木や紙のように空気中では安定であるが、堆肥中、湿った土中、活性汚泥中、淡水中および海水中で生分解し、最終的には水と二酸化炭素に分解される。また、連続相中に含まれる無機充填剤については、自然界に存在する無機化合物を使用するために、その廃棄に伴う自然界への影響は比較的少ないと考えられる。

このように、これら生分解性樹脂の実用化例はまだ少ないものの、既存の合成樹脂製品に代わるものとして、自然環境に与える負荷の小さい生分解性樹脂を使用した製品が登場してきている。

#### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、これら生分解性樹脂を実際の製品として使用するにあたっては、その強度および成形性など解決しなければならない問題が数多くある。ところが、現時点では、これら全ての要件を満足する生分解性樹脂は上市されていない。

この発明は、生分解性樹脂にファスナー等の使用に十分耐えうる強度を与えるために、異なる二種類の生分解性樹脂材料と無機充填剤の複合化を行い、三成分系とすることで、それぞれの生分解性樹脂の短所を補い合い、個々の物性より良好な性能を引き出そうと

するものである。

【課題を解決するための手段】

本発明者らは上記課題を解決するべく鋭意研究開発を重ねた結果、無機充填剤を含有する生分解性樹脂連続相に、少量の分散相となる生分解性樹脂を混在させ、三成分系とすることで、材料の機械強度に大きな影響を与える「伸び」を著しく大きく出来るという予想外の事実を見出し、本発明を完成するに至った。

すなわち本発明においては、上記に示すような手段を用いることで著しく伸びのある生分解性樹脂を調製、原材料として使用することにより、より強度的に優れた生分解性樹脂成形品を提供するものである。

以下に本発明の根拠を述べるが、本発明における生分解性樹脂とは、ポリブチレンサクシネートまたはポリ乳酸に限定するものではなく、公知の生分解機能を有する樹脂を際限なく利用できる。また、無機充填剤を成形品の構成成分として用いるが、本発明においては、公知の無機充填剤を際限なく利用することができ、なんらタルクおよび炭酸カルシウムに限定するものではない。

今回、無機充填剤を含有する生分解性樹脂連続相として、タルク含有ポリブチレンサクシネートを、他方、分散相として生分解性樹脂であるポリ乳酸を使用した。タルク含有ポリブチレンサクシネートおよびポリ乳酸の両者とも単独で用いた場合は、わずか数%程度の伸びを示すに過ぎない【表1】。

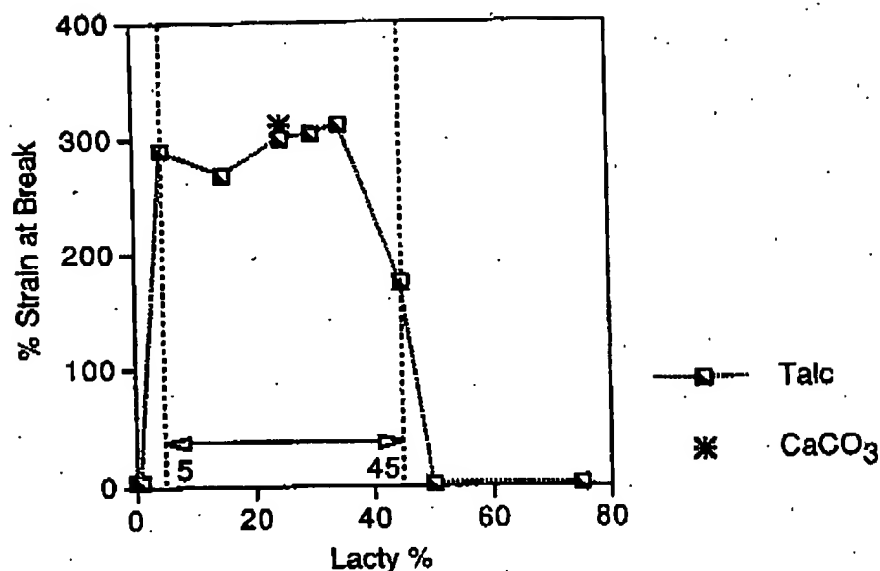
【表1】

生分解性樹脂	伸び/%
ポリブチレンサクシネート(タルク30%含有)	6.4
ポリ乳酸	1.0

ところが、タルク含有ポリブチレンサクシネートを連続相として、他方、ポリ乳酸を分散相として、両者を混練することにより、300%近い伸びを示す生分解性樹脂成形品を提供することが出来る。事実、無機充填剤含有ポリブチレンサクシネート/ポリ乳酸からなる種々の混合比の樹脂を調製し、それぞれについて物性調査を行った【図1】。

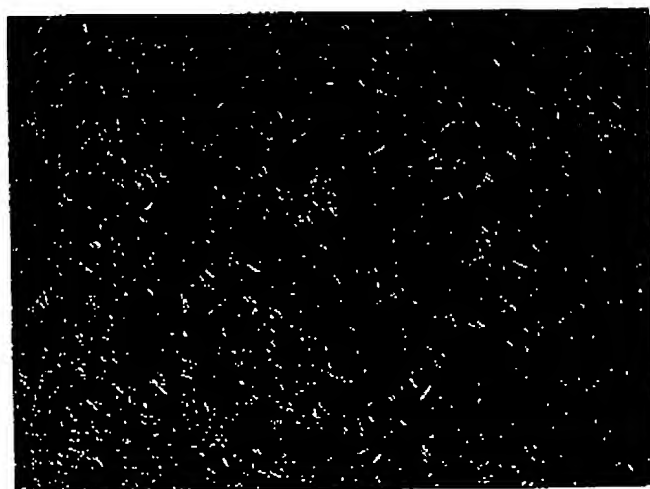


【図 1】



【図 1】 から、引張試験時における伸びは、タルク含有ポリブチレンサクシネートおよびポリ乳酸両樹脂の混合比に大きく依存していることは明らかである。さらに、通常、多成分系高分子材料においては、構成する成分を混合する際に、通常は最も多い成分が連続相を、また少量成分が分散相を形成することが知られている。今回の場合においても、大きな伸びの見られる混合比においては、タルク含有ポリブチレンサクシネートが連続相を、また、ポリ乳酸が分散相を形成していると考えられる。実際にこれらについてその分散状態を光学顕微鏡で観察すると、タルク含有ポリブチレンサクシネートが連続相を、また、ポリ乳酸が分散相を形成している事が理解できる【図 2】。

【図 2】



上記の結果は、タルク含有ポリブチレンサクシネートを連続相およびポリ乳酸を分散相とする、換言するならば、ポリ乳酸粒子がタルク含有ポリブチレンサクシネート中に分散した三相構造とすることにより、当該生分解性樹脂成形品において著しい伸びを付与できることを明らかにした。さらに好適に先述の機能を付与するためには、分散相を構成する生分解性樹脂の混合量を当該成形品全重量に対して5-45%とすることで、先述の機能をより強く発現させることができることを明らかにしたものである。

なお、炭酸カルシウムを連続相の無機充填剤として選択した場合においても同様の効果を得る【図1】。

以上より、本発明では、多成分系生分解性樹脂成形品において、材料の機械物性で重要な位置を占める伸びを改善するために、当該成形品を構成する連続相として無機充填剤を含有する生分解性樹脂を、また、構成する分散相としてその連続相とは異なる生分解性樹脂を使用し、その両者を分散させ三成分系の生分解性樹脂成形品することで課題を解決するものである。さらに好ましくは、上記連続相として、ポリブチレンサクシネートを、分散相としてポリ乳酸を、また、無機充填剤としてタルクおよび炭酸カルシウムを使用することが望ましい。さらに良好な結果を得るためには、上記条件下で分散相を構成するポリ乳酸の混合量を当該成形品全重量に対して5-45%とすれば良い。

すなわち、本発明における生分解性樹脂成形品の最大の特徴は、多成分系生分解性樹脂からなる当該成形品において、連続相として、無機充填剤を含有する生分解性樹脂を、分散相として、連続相と異なる生分解性樹脂を分散させた、これら三成分系から構成される成形品であること、好ましくは、その連続相として、ポリブチレンサクシネートを、その分散相としてポリ乳酸を、また、その無機充填剤としてタルクおよび炭酸カルシウムを使用すること、さらに好適には、上記条件下で分散相を構成するポリ乳酸の混合量を当該成形品全重量に対して5-45%であることによる。したがって、当該生分解性樹脂成形品をかかると三相構造を有すること、さらには、かかる生分解性樹脂をかかると割合にて混合することにより、成形品の伸びおよび強度を上昇させることが可能である。

本発明における生分解性樹脂、ポリブチレンサクシネートおよびポリ乳酸は、また、無機充填剤、タルクおよび炭酸カルシウムは、公知の方法により製造されたものが特に制限無く使用される。

本発明の成形品の製造方法は特に制限されない。最も代表的な製法を例示すれば、表面処理により相溶性を付与した無機充填剤を予めポリブチレンサクシネート中に混合し十分に混練した後、ポリ乳酸を、全混合物重量に対して約5-45%となるように混合し、混練装置を用いて190℃で混練を行う。混練された樹脂を射出成形機によって成形を行うことにより、タルク含有ポリブチレンサクシネート連続相中にポリ乳酸粒子が分散相として分散していることを特徴とする、生分解性樹脂成形品の製造方法を挙げることが

できる。すなわち、本発明者らはタルク含有ポリブチレンサクシネートとポリ乳酸を所定の混合比にて混練し、混練された樹脂を射出成形することにより、より高強度の生分解性樹脂射出成形品を容易にかつ再現性良く得られることを見出した。上記混練温度はその温度に限定するものではなく当該樹脂の溶融する温度以上であればその温度で混練すればよい。また両樹脂の混練方法について、混練装置を用いない、すなわち、両樹脂をペレットの状態にて成形前に混合する方法も採用することができる。

### 【実施例】

以下に、本発明をさらに具体的に説明するために実施例を挙げるが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

#### 【実施例 1】

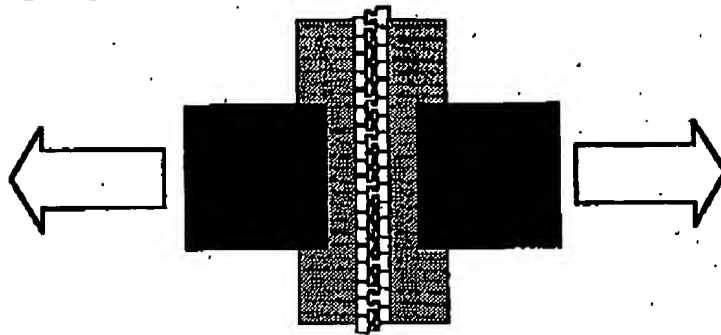
原料は市販の生分解性樹脂を使用する。本実施例においては、タルク含有ポリブチレンサクシネートとして昭和高分子(株)製の脂肪族ポリエステル系生分解性樹脂である「ピオノーレ」#1020のタルク含有(30%)グレードを、また、ポリ乳酸として(株)島津製作所製のポリ乳酸系生分解性樹脂である「ラクティ」#2012をそれぞれ使用した。まず、これらのペレットを減圧下80℃にて4時間乾燥した。乾燥後、ドライブレンド方式で射出成形機にて射出ファスナーとし、ピオノーレのタルク含有グレードのみからなるファスナー成形品Aおよびピオノーレのタルク30%含有グレード/ラクティ=80/20、すなわち、ピオノーレ/タルク/ラクティ=56/24/20からなるファスナー成形品Bを得た。

成形品AおよびBのそれぞれについて横引き強度の測定を行った。その結果を【表2】に示す。なお、その横引き強度の測定方法の概略について【図3】に示す。【表2】において、タルク含有ピオノーレのみの場合(成形品A)と、タルク含有ピオノーレを連続相およびラクティを分散相とした場合(成形品B)の両者を比較すると、ラクティを分散相とした成形品Bのファスナーの横引き強度も強くなっていることが分かる。このように、無機充填剤含有生分解性樹脂連続相と生分解性樹脂分散相から成る三相構造を有することによる強度上昇の効果を確認できた。

【表2】

成形品	構成	横引き強度/kgf・25mm <sup>1</sup>
A	ピオノーレ/タルク=70/30	29.7
B	ピオノーレ/タルク/ラクティ=56/24/20	35.9

【図 3】



引張速度は 300 mm / 分、クランプ幅は 25 mm

#### 【図面の簡単な説明】

【図 1】 タルク含有ポリブチレンサクシネート / ポリ乳酸または炭酸カルシウム含有ポリブチレンサクシネート / ポリ乳酸の各種混合比における伸びを示す。横軸は、混合樹脂および無機充填剤全体に対するポリ乳酸の占める割合を重量 % で示す。また、縦軸は伸びを % Strain で示す。図中の点線で囲まれた部分 (混合比 5-45 ラクティ%) は推奨範囲である。なお、伸び測定時の標線間距離は 50 mm である。

【図 2】 タルク含有ポリブチレンサクシネート / ポリ乳酸 = 75 / 25 混合比における、モノフィラメントの断面偏光顕微鏡写真を示す。撮影はクロスニコル条件下、1/4 波長板を用いて行った。図中の紫色部分はポリブチレンサクシネート成分を、また、橙色部分はポリ乳酸成分を、また、青色または青白色部分はタルクを示す。

【図 3】 実施例 1 における横引き強度の測定規格を示す。ファスナーをかみ合わせたチェーンの状態、チェーンかみ合い方向に対して図のように一定速度 (300 mm / 分) で、引張試験機を利用してテープを引っ張り抵抗を測定する。なお、クランプ幅は 25 mm である。

- 1 -

CONFIDENTIAL

## REPORT ON INVENTION/UTILITY MODEL

YKK CORPORATION

I.P.	Kind	P.U.D.TD	KEYWORD	R94	
Dept.	N.BKT NO.	E97126	O.BKT.NO.	E9033D	FILE NO. -

Date of Report: September 17, 1997

Title	FORMED ARTICLE OF BIODEGRADABLE RESIN				
	Belonging to	Extension	Name	Employee's Number	Address
Inventors	Research & Develop. Division	3541	Yoshifumi MIYAJIMA	9630046	YKK CORP. Hakukoryo A-209 4018, Mikkaichi, Kurobe-shi, Toyama-ken
	Fastening Products Division	2609	Mutsuo HINOTA	7630020	200, Kuseno, Asehi-machi, Shimonikawa-gun, Toyama-ken
	Research & Develop. Division	3541	Mamoru TANAKA	7330023	4210-54, Nyuzen, Nyuzen-machi, Shimonikawa-gun, Toyama-ken
	Research & Develop. Division	3541	Akira ISHIBASEI	8031009	1-6-24, Suzukakedai, Yoneda, Toyama-shi, Toyama-ken

-2-

[SUMMARY]

[Title of the Invention]

FORMED ARTICLE OF BIODEGRADABLE RESIN

[Object]

An object is to provide a formed article which exhibits functional characteristics on a par with an existing synthetic resin when put into practical use and has such biodegradable properties that, when discarded after use, it succumbs to decomposition by the action of microorganisms occurring in the physical world.

[Constitution]

There is provided a formed article characterized by having a two-phase structure comprising as main components thereof two components, polybutylene succinate and polylactic acid which are biodegradable resins, wherein particles of the polylactic acid portion are dispersed in the matrix of polybutylene succinate, or further characterized by the fact that the diameter of the particles of the polylactic acid portion is not more than 9  $\mu$ m.

-3-

[Name of Document]

SPECIFICATION

[Title of the Invention]

FORMED ARTICLE OF BIODEGRADABLE RESIN

[Scope of Claim for Patent]

[Claim 1]

A formed article made of a biodegradable resin characterized by comprising as main components thereof two components, a polybutylene succinate and a polylactic acid, wherein the polybutylene succinate component accounts for a proportion of not less than 50% of the resin and the formed article is possessed of a two-phase structure such that particles of the polylactic acid portion are dispersed in the matrix of the polybutylene succinate.

[Claim 2]

The formed article according to claim 1, characterized in that the polybutylene succinate component accounts for a proportion in the range of 55 to 90% of the resin.

[Claim 3]

The formed article according to claims 1 and 2, wherein the formed article is a slide fastener.

[Claim 4]

The formed article according to claims 1 and 2, wherein the formed article is a separable fastener.

[Claim 5]

A formed article made of a biodegradable resin characterized by comprising as main components thereof two components, a polybutylene succinate and a polylactic acid, wherein the diameter of the particles of the polylactic acid portion is not more than 9  $\mu\text{m}$ .

[Claim 6]

-4-

The formed article according to claim 5, wherein the formed article is a slide fastener.

[Claim 7]

The formed article according to claim 5, wherein the formed article is a separable fastener.

[Claim 8]

A formed article made of a biodegradable resin characterized by comprising as main components thereof two components, a polybutylene succinate and a polylactic acid, wherein the polybutylene succinate component accounts for a proportion of not less than 50% of the resin, the formed article is possessed of a two-phase structure such that particles of the polylactic acid portion are dispersed in the matrix of the polybutylene succinate, and the diameter of the particles of the polylactic acid portion is not more than 9  $\mu\text{m}$ .

[Claim 9]

The formed article according to claim 8, wherein the formed article is a slide fastener.

[Claim 10]

The formed article according to claim 8, wherein the formed article is a separable fastener.

[Detailed Description of the Invention]

[Field of Industrial Application]

This invention relates to a formed article made of a material comprising two components, a polybutylene succinate and a polylactic acid which have biodegradable functional characteristics. The present invention relates particularly to formed articles for fasteners which are fabricated by injection molding or extrusion molding.

[Prior Art]

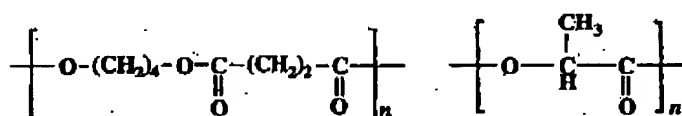


-5-

Of these biodegradable resins, the polybutylene succinate is an aliphatic polyester which is chemically synthesized mainly from glycol and an aliphatic dicarboxylic acid. A polylactic acid is chemically synthesized by using L-lactic acid as a monomer. Their main chemical structural formulas are represented by the following [Formula 1] and [Formula 2], respectively.

[Formula 1]

[Formula 2]



As regards the polybutylene succinate, the biodegradable resin "Bionolle" using this compound as a main component has been already marketed. The "TECHNICAL DATA SHEET, Bionolle, Biodegradable Plastic (1996)" issued by Showa Highpolymer Co., Ltd., the producer of this biodegradable resin, offers such information as the outline, attributes, and structure thereof. As regards the polylactic acid, the biodegradable resin "LACT" using polylactic acid as a main component has been already marketed. The "SHIMADZU LACT Report - Lactic Acid Type Biodegradable Plastic No. 1 LACT" issued by Shimadzu Seisakusho K.K., the producer of this biodegradable resin, offers such information as the structure, attributes, and mechanical properties thereof. While these biodegradable resins are as stable in the air as wood and paper, they succumb to biodegradation in compost, wet soil, activated sludge, fresh water, and seawater and ultimately yield to decomposition into water and carbon dioxide.

The products of synthetic resin in use to date, owing to the outstanding features thereof such as light weight, low price, and easy workability, have infiltrated into every area of our daily life and now constitute themselves indispensable raw materials in the

-6-

modern economic society. Fasteners are no exception to this statement. The resin fasteners using synthetic resins are utilized in various products which allow the characteristic features of synthetic resin to be harnessed advantageously. These products of synthetic resin, however, entail such problems of public nuisance as, for example, destruction and pollution of natural environment when they are discarded after use because they are suffered to persist in their undecomposed state and accumulate in the natural environment. Though the cases of successful adaptation of these biodegradable resins for practical use are still few in number, the products which use such biodegradable resins as have only a light load on the physical environment have begun to appear as alternatives for the existing products of synthetic resin.

[Problems to be solved by the Invention]

The use of such biodegradable resins as mentioned above in such actual products as fasteners, however, incurs a heap of problems on strength and moldability which remain yet to be solved. Unfortunately, none of the biodegradable resins which have been already introduced to the market satisfies all these requirements.

The present invention, with a view to imparting to a biodegradable resin such strength as fully suffices effective use of the resin as in fasteners and at the same time enabling the resin to exhibit improved moldability important for the process of production, consists in compounding two different kinds of biodegradable resin materials thereby compensating these biodegradable resins severally for their defects and deriving good qualities from the physical properties of the individual resin materials. In the category of the conventional synthetic resins, this approach generally passes under the name of polymer blend technique. The substance of this technique is described in detail in Saburo Akiyama et al. "Polymer Blend" published by CMG Press

-7-

(1981), for example.

[Means for solving the Problems]

The present inventors, after pursuing a diligent study to solve the problems mentioned above, have taken notice of the state of dispersion of biodegradable resins and consequently discovered that the control of this state of dispersion brings about a significant effect on the material strength and further that the particle diameter of the component forming the disperse phase of the biodegradable resin and the material strength copiously correlate each other and the material strength is markedly increased by limiting the particle diameter to below a specific magnitude. These discoveries have led to perfection of the present invention.

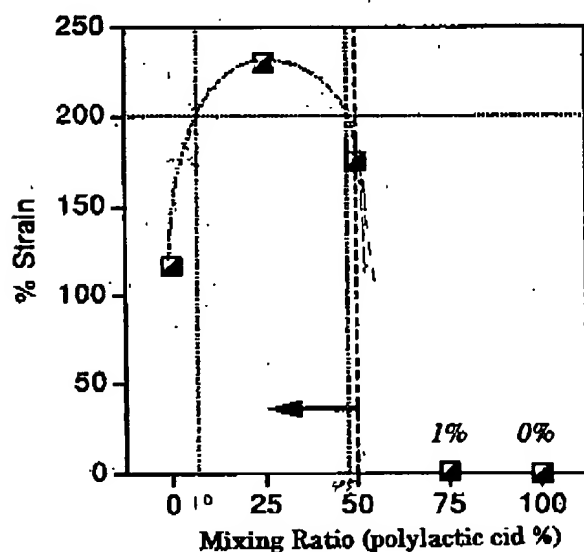
In the polymer materials, when two components are mixed, one of them forms a disperse phase and the other forms a continuous phase. These phases are collectively referred to as a sea and island structure and bear heavily on the strength of material. This phenomenon has been minutely investigated with respect to the multicomponent systems in the existing synthetic resins and the outcomes of the investigation are described in detail in the book compiled by Kobunshi Gakkai, titled "Polymer Alloy - Base and Applications", and published by Tokyo Kagaku Dojin (1981).

In fact, in the formed article of a biodegradable resin composed of a polybutylene succinate and a polylactic acid, one of the components is destined to form a disperse phase and the other a continuous phase. The formed article has the physical properties thereof widely varied, depending on which of the two component resins forms the disperse phase. This choice is decided by the mixing ratio of the two biodegradable resins.

-8-

When resins having polybutyl ne succinate and polylactic acid in varying mixing ratios were prepared and examined for physical properties, it was clearly found that the magnitude of elongation during the tensile test depended largely on the state of dispersion of the two resins. [Fig. 1] depicts the elongation during the tensile test relative to the mixing ratio of the two resins in a relevant sample.

[Fig. 1]



It is noted from the results shown in [Fig. 1] that the elongation markedly increases when the proportion of the polybutylene succinate component exceeds 50% and that the magnitude of % strain surpasses 200% and the elongation reaches the maximum when the proportion of the polybutylene succinate component is in the approximate range of 55 to 90%. The elongation is high at the mixing ratio in which the proportion of the polybutylene succinate component is high. From this fact, it is easily inferred that the polybutylene succinate which accounts for such a large proportion easily forms the continuous phase. In fact, when the mixed resins having the mixing

-9-

ratios in the range mentioned above are observed to test for the state of dispersion under an optical microscope, it is understood that the polylactic acid forms the disperse phase and the polybutylene succinate the continuous phase (Fig. 2).

[Fig. 2]



The results shown above indicate the fact that by using the polylactic acid for the disperse phase and the polybutylene succinate for the continuous phase, namely by forming a two-phase structure having the particles of the polylactic acid dispersed in the matrix of the polybutylene succinate, and further by using the polybutylene succinate component in a proportion exceeding 50%, preferably falling in the range of 55 to 90%, the binary resin product consequently produced is enabled to acquire a marked improvement

- 10 -

in elongation.

The present invention, for the purpose of improving the elongation which constitutes itself an important position in the mechanical properties of material and in view of the results discussed above, is directed to providing a formed article of biodegradable resin comprising a part which is composed of the two components of polybutylene succinate and polylactic acid wherein the polybutylene succinate component accounts for a proportion of not less than 50% and the particles of the polylactic acid are dispersed in the matrix of the polybutylene succinate to give rise to a two-phase structure.

For the purpose of producing the formed article of biodegradable resin constructed as described above, it suffices during the mixture of the polybutylene succinate with the polylactic acid to use the polybutylene succinate in a larger proportion than the polylactic acid. Specifically, for the sake of enabling the polybutylene succinate to form the continuous phase in the binary polybutylene succinate/polylactic acid resin, the proportion of the polybutylene succinate during the mixture of the two biodegradable resins is required to be not less than 50% based on the total weight of the resins.

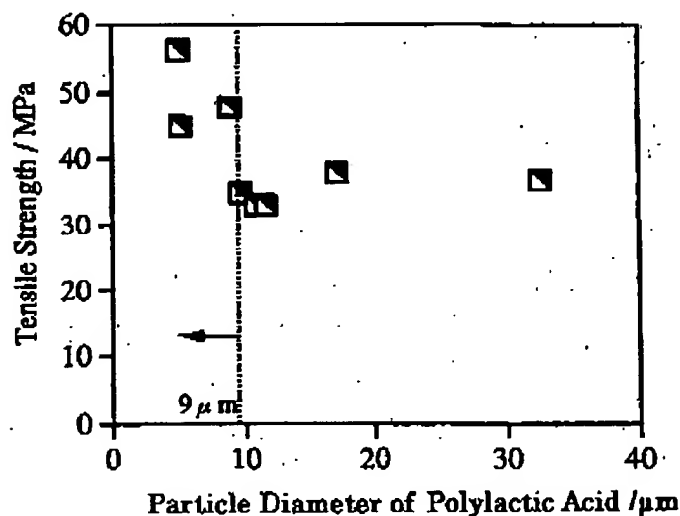
Further, the present inventors have discovered that in the formed article characterized by fulfilling the condition mentioned above, namely the two-phase structure having the particles of the polylactic acid dispersed in the matrix of the polybutylene succinate, the strength of the material is heavily affected by the diameter of the particles of the polylactic acid in the structure.

In the multicomponent polymer material, the magnitude of the

- 11 -

diameter of the particles forming the disperse phase brings about a large effect on the strength of the material. The strength of the material increases in accordance as the diameter of the particles of the disperse phase decreases. In fact, in the binary resin mentioned above in which the polybutylene succinate forms the continuous phase and the polylactic acid the disperse phase, the relation between the diameter of the polylactic acid particles of the disperse phase and the material strength can be obtained by an experiment. This relation was determined in the relevant binary biodegradable resin by preparing a number of samples containing polylactic acid particles of varied diameters, measuring the diameters of polylactic acid particles in each sample, finding the strength of the sample by a tensile test, and correlating the resultant data of particle diameter and strength. The results of this experiment are shown in [Fig. 3].

[Fig. 3]



It is clearly noted from the above diagram that conspicuous increases in the material strength were observed when the diameters of polylactic acid particles were not more than 9  $\mu\text{m}$ . Specifically,

- 12 -

the present invention provides the formed article of biodegradable resin produced in the two-phase structure having the particles of the polylactic acid dispersed in the matrix of the polybutylene succinate, wherein the particles of the polylactic acid have diameters of not more than 9  $\mu\text{m}$ .

The biodegradable resins, i.e. the polybutylene succinate and the polylactic acid, to be used in the present invention can be produced by known methods and they can be adopted for the use without any particular restriction.

The most significant characteristic features of the formed article made of a biodegradable resin according to the present invention reside in the fact that the formed article is possessed of a two-phase structure such that particles of the polylactic acid portion are dispersed in the matrix of the polybutylene succinate and that the diameter of the particles of the polylactic acid portion is preferably not more than 9  $\mu\text{m}$ . That is to say, the formed article of biodegradable resin is enabled to acquire an increased strength by causing such a two-phase structure, or by causing such a two-phase structure having such particle diameters of the polylactic acid.

The formed article contemplated by the present invention is not discriminated on account of the particular method of production to be adopted. A method which may be cited as the most typical method for the production of a formed article of biodegradable resin comprises first kneading polybutylene succinate and polylactic acid in a weight ratio having the polybutylene succinate in a major proportion at about 190°C with a kneading device and then molding the resin resulting from the kneading by means of an injection molding device thereby obtaining a molded article of biodegradable resin characterized by having a two-phase structure containing particles



-13-

of the polylactic acid component dispersed in the matrix of the polybutylene succinate. That is to say, the present inventors have discovered that a formed article of biodegradable resin having higher strength is obtained easily with high reproducibility by kneading the polybutylene succinate and the polyacetic acid at a stated mixing ratio and then injection molding the kneaded resin. The kneading temperature mentioned above does not need to be fixed at the magnitude mentioned above. The kneading which is performed at a temperature exceeding the melting points of the relevant resins suffices for the intended purpose. Optionally, the kneading of the two resins may be effected by a method which avoids using a kneading device, namely a method which comprises mixing the two resins each in the shape of pellets prior to the step of molding.

[Example]

Now, a working example is given below to describe the present invention more concretely. As a matter of course, the present invention is not limited to the following examples.

[Example 1]

Commercially available biodegradable resins were used as the raw materials herein. In the present example, the aliphatic polyester type biodegradable resin made by Showa Highpolymer Co., Ltd., "Bionolle" #1020 was used as polybutylene succinate and the polylactic acid type biodegradable resin made by Shimadzu Seisakusho K.K., "LACT" was used as polylactic acid. First, the pellets of these resins were dried under a reduced pressure at 80°C for four hours. The two resins weighed out in amounts calculated to result in a Bionolle/LACT weight ratio of 75/25 were thrown into a kneading device. They were kneaded under the kneading conditions of 170°C of kneading temperature, 60 r/min. of mixer revolution number, and 5 minutes of kneading time to obtain the resin "a" of the quality

-14-

shown in [Table 1]. Likewise, the resin "b" shown in [Table 1] was obtained under the kneading conditions of 190°C of kneading temperature, 60 r/min. of mixer revolution number, and 5 minutes of kneading time. Further, the resin "c" shown in [Table 1] was obtained under the kneading conditions of 210°C of kneading temperature, 60 r/min. of mixer revolution number, and 5 minutes of kneading time.

[Table 1]

Resin	Kneading temperature (°C)	Tensile strength (MPa)	Diameter of LACT particles (μm)	Molded article	Lateral tensile strength kgf.(25mm) <sup>-1</sup>
a	170	41	7.3	A	30
b	190	40	5.5	B	32
c	210	48	4.1	C	32

The resins a and b prepared by the procedure described above were severally extruded in the form of a monofilament and tested for tensile strength by the use of a tensile tester. The cross section of the monofilament of the resin a or b was observed to measure the diameters of the particles of LACT as the polylactic acid component. The data of tensile strength and the data of diameter of LACT particles consequently obtained are shown collectively in [Table 1]. It is clearly noted from the results shown therein that the LACT particles in each of the resins had diameters of not more than 9 μm and the strength of the kneaded resin increased in accordance as the particle diameter decreased.

The resins a, b, and c were severally processed with an injection molding device to obtain injection molded slide fasteners A, B, and C of the SVS specification and these fasteners were tested for lateral tensile strength. The results of the test are shown in conjunction with the diameters of LACT particles in [Table 1]. An outline of

-15-

the method for measuring the lateral tensile strength is illustrated in [Fig. 4]. It is clearly noted from the results shown in [Table 1] that the lateral tensile strength of the fastener increased in proportion as the diameter of the LACT particles decreased. All the molded articles showed such magnitudes of lateral tensile strength as exceeded the standard level of 25 kgf/25 mm of 5VS specified in JIS. The results demonstrate the effect brought about in the improvement of strength by the fact that the diameter of LACT particles was not more than 9  $\mu$ m.

[Fig. 4]



Rate of Pulling: 800 mm/min., Width of Clamp: 25 mm

[Brief Description of the Drawings]

[Fig. 1]

This figure shows the elongation exhibited by a resin having a varying polybutylene succinate/polylactic acid mixing ratio. The abscissa axis is the scale of the proportion of the polylactic acid to the total amount of the mixed resins expressed in % by weight and the ordinate axis is the scale of the elongation expressed in % strain. The hatched part enclosed with a dotted line in the diagram (the mixing ratio of LACT ranging from 10 through 45% by weight and the % strain above 200%) represents a recommended range. The distance between two gage marks on a test piece used in the measurement of elongation was 50 mm.

-16-

## [Fig. 2]

This figure shows a polarized photomicrograph of the cross section of a monofilament having a polybutylene succinate/polylactic acid mixing ratio of 50/50. The cross section was photographed by using a quarter-wave plate under the condition of cross Nichol. The orange-colored part of the diagram represents the polybutylene succinate component and the purple part the polylactic acid component.

## [Fig. 3]

This figure shows the relation between the tensile strength of the material and the polylactic acid particle diameter of a resin formed of polybutylene succinate and polylactic acid. The abscissa axis is the polylactic acid particle diameters ( $\mu\text{m}$ ) and the ordinate axis is the tensile strength (MPa).

## [Fig. 4]

This figure shows the specification for determining the lateral tensile strength in Example 1. With fastener stringers so held as to keep coupling elements in a meshed state, fastener tapes were drawn by the use of a tensile tester at a fixed rate (300 mm/min.) in the direction of engagement of the stringers as illustrated in the diagram to test for tensile resistance. Clamps had a width of 25 mm.

秘

## 発明・考案届出書



YKK株式会社

知財	種別	(P)・U・D・TD	KEYWORD	RPL	FILE NO.	—
	N.HKT NO.	H 1126	O.HKT NO.	E92032		

97年9月17日提出

発明・考案者	名称	生分解性樹脂成形品				
	所属	内容	氏名(フリガナ)	従業員番号	住所(フリガナ、番地まで正確に)	
	研究開発本部 樹脂技術センター	3541	宮島 吉史	9630046	山形県山形市三日月 4018 YKK(株)白峰寮 A-209	
	ファスニング事業本部 樹脂技術センター	2609	広田 聡夫	7630020	山形県下新川郡朝日町草野 200	
	研究開発本部 樹脂技術センター	3541	田中 守	7330023	山形県下新川郡入善町入善 4210-64	
	研究開発本部 樹脂技術センター	3541	石橋 亮	8031009	山形県宮山市米田すずかけ台 1-6-24	
実施予定	該当項目に○印をつけて下さい	1. 有 (イ) 販売又は出荷予定 (いつ: 年 月 日頃) (ロ) サンプル出荷予定 (いつ: 年 月 日頃) (ハ) 外注有り (いつ: 年 月 日頃) (どこへ: ) ② 将来可能性有り 3. 無 (アイデアのみ)				
	公表予定	1. 学会発表の予定 (有・無) 予定日 ( 年 月 日) 2. 業者との打合せ予定 (有・無) 予定日 ( 年 月 日) 3. 印刷物発行の予定 (有・無) 予定日 ( 年 月 日) 4. 社外展示予定 (有・無) 予定日 ( 年 月 日) 5. 社内発表予定 (有・無) 予定日 ( 年 月 日)				
他社との関係	他社と共同出願にする必要性 (有・無) (会社名: )					
ユ・開発テ・NO.			事業本部開発テ・NO.	61001		
図 番	関連製品名・関連部品名		関連装置名・関連ユニット名			
所 属 部 長 入 欄	出願の目的	1. 排他的独占権を確保したい。 2. 技術を公開することで他者の類似技術の権利化を阻止したい。(公開技術の活用) 3. ノウハウとして保護したいが、他者の権利化は阻止したい。(公開前に放棄) 但し、この手段は日本だけの独特なものです。 4. その他の目的があれば具体的に記入下さい。(ex.海外に対するライセンス・営業政策上など) (具体的に: )			外国出願の要否	1. 要 2. 否
	出願形態	① 特許 2. 実用新案 3. 意匠 4. 公開技術 5. その他 ( )				
	出願内容の重要度	A. 最重要 B. 重要 C. 普通 (※チェックシートを活用下さい。)				
	費用責任事業部	E. ファブリング B. 建材製造 M. 工機 R. 研究開発 C. ユ・レポート				
出願の緊急度	1. 普通 2. 急ぐ ( 年 月 日頃)					

知財	受付日	97.10.14	受付者氏名	岩田	担当者氏名	白田
	業 種	F	ラング	C		

**【要旨】**

**【発明の名称】**

生分解性樹脂成形品

**【目的】**

通常使用時は既存の合成樹脂と同等の機能を有するが、廃棄すると自然界に存在する微生物の働きによって分解されるという生分解性を有する成形品を提供する。

**【構成】**

生分解性樹脂であるポリブチレンサクシネート (Polybutylenesuccinate) およびポリ乳酸 (Polylacticacid) の二成分を主成分とし、ポリ乳酸部分の粒子が、ポリブチレンサクシネート媒体中に分散した二相構造であることを特徴とし、さらには、ポリ乳酸部分の粒径が  $9\mu\text{m}$  以下である事の特徴とする成形品を提供するものである。

**【書類名】**

明細書

**【発明の名称】**

生分解性樹脂成形品

**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

ポリブチレンサクシネート (polybutylenesuccinate) およびポリ乳酸 (polylacticacid) の二成分を主成分とする生分解性樹脂成形品の、ポリブチレンサクシネート成分の占める割合が50%以上であり、ポリ乳酸部分の粒子がポリブチレンサクシネート媒体中に分散した二相構造であることを特徴とする成形品。

**【請求項 2】**

ポリブチレンサクシネート成分の占める割合が55-90%であることを特徴とする請求項1記載の成形品。

**【請求項 3】**

成形品がスライドファスナーである請求項1および2記載の成形品

**【請求項 4】**

成形品が面ファスナーである請求項1および2記載の成形品

**【請求項 5】**

ポリブチレンサクシネートおよびポリ乳酸の二成分を主成分とする生分解性樹脂成形品の、ポリ乳酸部分の粒径を $9\mu\text{m}$ 以下とすることを特徴とする成形品

**【請求項 6】**

成形品がスライドファスナーである請求項5記載の成形品

**【請求項 7】**

成形品が面ファスナーである請求項5記載の成形品

**【請求項 8】**

ポリブチレンサクシネートおよびポリ乳酸の二成分を主成分とする生分解性樹脂成形品の、ポリブチレンサクシネート成分の占める割合が50%以上であり、ポリ乳酸部分の粒子がポリブチレンサクシネート媒体中に分散した二相構造であること、かつ、ポリ乳酸部分の粒径を $9\mu\text{m}$ 以下とすることを特徴とする成形品。

**【請求項 9】**

成形品がスライドファスナーである請求項8記載の成形品

**【請求項 10】**

成形品が面ファスナーである請求項8記載の成形品

**【発明の詳細な説明】**

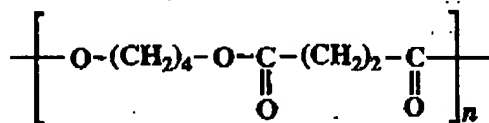
### 【産業上の利用分野】

本発明は、生分解機能を有するポリブチレンサクシネートおよびポリ乳酸の二成分からなる成形品に関するものである。特にファスナーに関して、射出成形および押し出し成形により加工される成形品に関する。

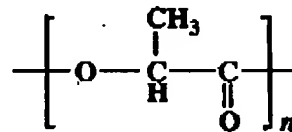
### 【従来の技術】

これらの生分解性樹脂のうち、ポリブチレンサクシネートは、主としてグリコールと脂肪族ジカルボン酸とより化学的に合成される脂肪族ポリエステルであり、また、ポリ乳酸はL-乳酸を単量体として化学合成される。その主たる化学構造式を【化1】および【化2】にそれぞれ示す。

【化1】



【化2】



このうち、ポリブチレンサクシネートについては、これを主成分とする生分解性樹脂「ビオノーレ」が既に上市されており、製造元である昭和高分子(株)の発行する「TECHNICAL DATA SHEET、ビオノーレ・生分解性プラスチック(1996)」にその概要、性状および構造などが示されている。また、ポリ乳酸についても、これを主成分とする生分解性樹脂「ラクティ」が既に上市されており、その製造元である(株)島津製作所から発行される「SHIMADZU LACT Report-乳酸系生分解性プラスチック No.1 ラクティ」に、その構造、性状および機械的特性などについて述べられている。これら生分解性樹脂は、木や紙のように空気中では安定であるが、堆肥中、湿った土中、活性汚泥中、淡水中および海水中で生分解し、最終的には水と二酸化炭素に分解される。

従来より使用されている合成樹脂製品は、軽量かつ安価で加工が容易であることから、我々の日常生活のあらゆる部分に浸透し、現代の経済社会に不可欠な素材となっている。ファスナーにおいてもその例外ではなく合成樹脂を利用した樹脂製ファスナーは、その特徴を活かして様々な製品に利用されている。しかしながら利用後は廃棄されるとそのままの形で分解することなく環境中に蓄積されるため、自然環境の破壊や汚染といった公害問題を引き起こす可能性がある。これに対して、実用化例はまだ少ないものの、既存の合成樹脂に代わるものとして環境に与える負荷の小さい生分解性樹脂を利用した製品が登場している。

### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、これら生分解性樹脂をファスナー等実際の製品として使用するにあたっては、その強度および成形性など解決しなければならない問題が山積している。ところ



が、現時点では、これら全ての要件を満足する生分解性樹脂は上市されていない。

この発明は、生分解性樹脂にファスナーとしての使用に十分耐えうる強度を与え、かつ、生産時に重要な成形性を改善するために、異なる二種類の生分解性樹脂材料の複合化を行い、それぞれの生分解性樹脂の短所を補い合うことで、個々の物性より良好な性能を引き出そうとするものである。なお従来の合成樹脂の範疇において、この手法は一般的にポリマーブレンドと称される技術であり、その技術内容については、例えば「秋山三郎他、ポリマーブレンド、CMG出版(1981)」に詳しい。

#### 【課題を解決するための手段】

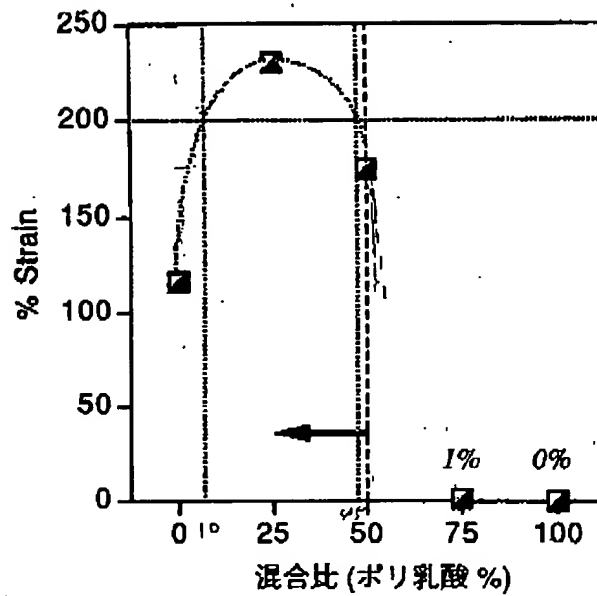
本発明者らは上記課題を解決するべく鋭意研究開発に邁進した結果、生分解性樹脂の分散状態に着目し、それらの制御を行うことで、材料強度に大きな影響を与えることが出来ること、および、当該生分解性樹脂の分散相に相当する成分の粒径と材料強度が大きく関連し、その粒径をある特定の値以下にすることにより材料の強度が著しく上昇することを見出し、本発明を完成するに至った。

高分子材料においては、二成分を混合する際に、通常いずれかが分散相を、また他方が連続相を形成する。これらは海島構造と称され、材料の強度に大きな影響を与える。この点について、既存の合成樹脂の多成分系においては精査されており、成書「高分子学会編、ポリマーアロイ基礎と応用、東京化学同人(1981)」にも詳細に述べられている。

事実、ポリブチレンサクシネートとポリ乳酸の二成分からなる当該生分解性樹脂成形品においても、一方が分散相を、他方が連続相を形成することとなる。両樹脂どちらが分散相に入るかにより成形品の物性は大きく異なったものとなる。この選択を決定づけるのは両生分解性樹脂の混合比である。

そこで、ポリブチレンサクシネート/ポリ乳酸からなる種々の混合比の樹脂を調製し、それぞれについて物性調査を行ったところ、引張試験時における伸びの量は、両樹脂の分散状態に大きく依存しているが明らかとなった。【図1】にそれぞれの混合比に対する引張試験時の伸びを示す。

【図 1】



【図 1】においては、ポリブチレンサクシネート成分が 50% 以上となると、伸びが著しく大きくなること、また、ポリブチレンサクシネート成分が 55-90% 付近で % Strain は 200% を越え最も伸びの大きい部分であることが分かる。これら伸びの多い混合比においてはポリブチレンサクシネート成分比が多い混合比であり、ポリブチレンサクシネートが連続相を形成し易いことは容易に予想される。事実、これらについて、その分散状態を光学顕微鏡にて観察すると、ポリ乳酸が分散相をまたポリブチレンサクシネートが連続相を形成している事が理解できる【図 2】。

【図 2】



上記の結果は、ポリ乳酸を分散相およびポリブチレンサクシネートを連続相とする、換言すれば、ポリ乳酸部分の粒子がポリブチレンサクシネート媒体中に分散した二相構造であることにより、または、ポリブチレンサクシネートの成分を 50% 以上、好ましくは 55—90% にすることにより当該二成分系樹脂製品に著しい伸びを付与できる事を明らかとした。

そこで本発明においては、材料の機械物性で重要な位置を占める伸びを改善するべく、先述の結果より、生分解性樹脂成形品においてポリブチレンサクシネート/ポリ乳酸の二成分により構成される部分において、ポリブチレンサクシネートの成分を 50% 以上とし、ポリ乳酸部分の粒子がポリブチレンサクシネート媒体中に分散した二相構造である成形品を提供するものである。

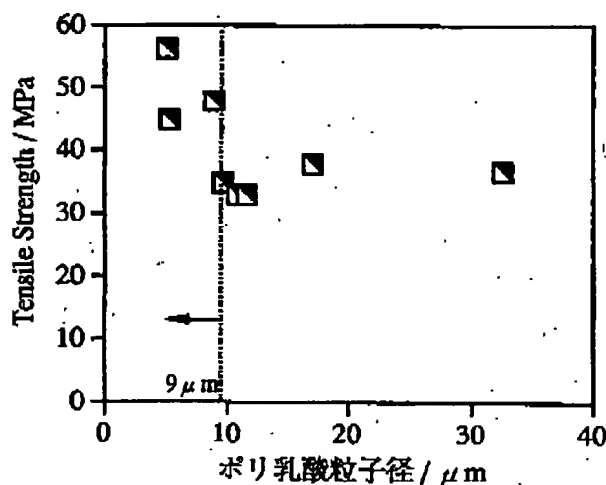
その具体的な手段としては、ポリブチレンサクシネートとポリ乳酸を混合する際、ポリブチレンサクシネートの混合量をポリ乳酸より多くすることで問題を解決する。すなわち、ポリブチレンサクシネート/ポリ乳酸の二成分系樹脂において、ポリブチレンサ

クシネートを連続相とするためには、両生分解性樹脂を混合する際にポリブチレンサクシネートの混合比を樹脂全体重量に対して 50% 以上とすることで表記の課題を解決する。

さらに上記条件下、すなわち、ポリ乳酸部分の粒子がポリブチレンサクシネート媒体中に分散した二相構造であることを特徴とした成形品において、構成するポリ乳酸粒子の粒子径は、材料の強度に大きな変化を与えることを見出した。

高分子多成分系材料においては、分散相を形成する粒子の径の大小は、その材料強度に大きな影響を与える。分散相の粒子径は微細であるほど材料の強度が上昇する。事実、当該二成分系樹脂について、ポリブチレンサクシネートが連続相を、ポリ乳酸が分散相を形成する場合において、分散相であるポリ乳酸粒子の粒径と材料強度の関係は実験により求めることが可能である。すなわち当該二成分系生分解性樹脂において、ポリ乳酸粒子の粒径の異なる試料を種々調製し、それらのポリ乳酸の粒径を測定し、強度を引張試験により求め、粒径と強度の関係を求めた。その結果を【図 3】に示す。

【図 3】



これらを見ると明らかなように、ポリ乳酸粒子径  $9\mu\text{m}$  以下で、材料強度の顕著な上昇が認められる。すなわち、本発明においてはポリ乳酸部分の粒子が、ポリブチレンサクシネート媒体中に分散した二相構造からなる成形品において、ポリ乳酸部分の粒径を  $9\mu\text{m}$  以下である生分解性樹脂成形品を提供するものである。

本発明における生分解性樹脂、ポリブチレンサクシネートおよびポリ乳酸は、公知の方法により製造されたものが特に制限無く使用される。

本発明の生分解性樹脂成形品の最大の特徴は、ポリ乳酸部分の粒子が、ポリブチレンサクシネート媒体中に分散した二相構造からなる生分解性樹脂成形品であること、ならびに、好ましくは、ポリ乳酸粒子の粒径を $9\mu\text{m}$ 以下であることによる。すなわち、当該生分解性樹脂成形品をかかると二相構造を有する事、または、この二相構造を有し、かつ、かかるポリ乳酸粒子径を有する成形品とすることにより、その強度を上昇させる事ができる。

本発明の成形品の製造方法は特に制限されない。最も代表的な製法を例示すれば、ポリブチレンサクシネートとポリ乳酸を、ポリブチレンサクシネートの多い重量成分比にて、 $190^{\circ}\text{C}$ で混練装置を用いて混練を行う。混練された樹脂を射出成形機によって成形を行うことにより、ポリ乳酸部分の粒子が、ポリブチレンサクシネート媒体中に分散した二相構造からなる成形品であることを特徴とする、生分解性樹脂成形品の製造方法を挙げることができる。すなわち、本発明者らはポリブチレンサクシネートとポリ乳酸を所定の混合比にて混練し、混練された樹脂を射出成形することにより、より高強度の生分解性樹脂射出成形品を容易にかつ再現性良く得られることを見出した。上記混練温度はその温度に限定するものではなく当該樹脂の溶融する温度以上であればその温度で混練すればよい。また両樹脂の混練方法について、混練装置を用いない、すなわち、両樹脂をペレットの状態にて成形前に混合する方法も採用することができる。

#### 【実施例】

以下に、本発明をさらに具体的に説明するために実施例を挙げるが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

#### 【実施例 1】

原料は市販の生分解性樹脂を使用する。本実施例においては、ポリブチレンサクシネートとして昭和高分子(株)製の脂肪族ポリエステル系生分解性樹脂である「ビオノーレ」#1020を、また、ポリ乳酸として(株)島津製作所製のポリ乳酸系生分解性樹脂である「ラクティ」をそれぞれ使用した。まず、これらのペレットを減圧下 $80^{\circ}\text{C}$ にて4時間乾燥した。両樹脂の重量をビオノーレ/ラクティ=75/25となるように計量し、混練装置へ投入した。混練温度 $170^{\circ}\text{C}$ 、ミキサー回転数 $60\text{ r/min}$ および混練時間5分にて混練後、【表1】に示す樹脂aを得た。また、混練温度 $190^{\circ}\text{C}$ 、ミキサー回転数 $60\text{ r/min}$ および混練時間5分にて混練後、【表1】に示す樹脂bを得た。さらに、混練温度 $210^{\circ}\text{C}$ 、ミキサー回転数 $60\text{ r/min}$ および混練時間5分にて混練後、【表1】に示す樹脂cを得た。

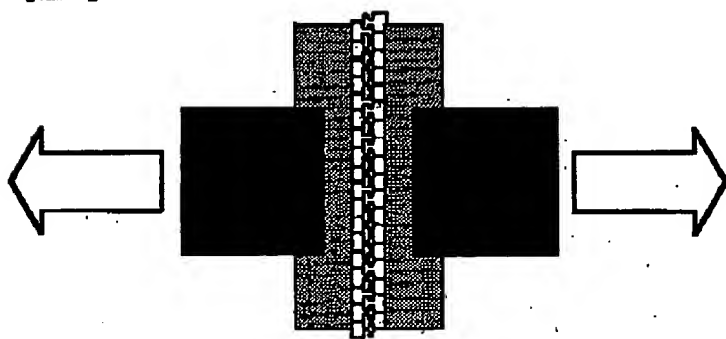
【表 1】

樹脂	混練温度/℃	引張強度/MPa	ラクティ粒子径/ $\mu\text{m}$	成形品	横引き強度/ $\text{kgf}\cdot(25\text{mm})^{-1}$
a	170	41	7.3	A	30
b	190	40	5.5	B	32
c	210	48	4.1	C	32

上述の方法にて調製された樹脂 a および b は、モノフィラメント状に押し出され、それぞれ引張試験機にて引張強度を測定した。また、樹脂 a および b から成るモノフィラメントの断面を観察し、ポリ乳酸成分であるラクティの粒径を測定した。それぞれについての引張強度とラクティ粒子の粒径を【表 1】に示す。これらから容易に分かるように、両樹脂においてはラクティ粒子の粒径が  $9\mu\text{m}$  以下であり、粒径が小さくなると、その混練樹脂の強度も上昇していることが分かる。

さらに樹脂 a、b および c について、射出成形機にて 5VS 規格の射出ファスナーとし、ファスナー成形品 A、B および C を得た。成形品 A、B および C のそれぞれについて横引き強度の測定を行った。その結果をラクティ粒子の粒径とともに【表 1】に示す。なお、その横引き強度の測定方法の概略について【図 4】に示す。【表 1】において、ラクティ粒子が小さいほど、ファスナーの横引き強度も強くなっていることが分かる。また、いずれの場合においても 5VS の JIS 規格に定める  $25\text{kgf}/25\text{mm}$  の横引き強度を上回る値を示し、ラクティ粒子の粒径が  $9\mu\text{m}$  以下であることによる強度上昇の効果を確認できた。

【図 4】



引張速度は  $300\text{mm}/\text{分}$ 、クランプ幅は  $25\text{mm}$

**【図面の簡単な説明】**

【図 1】 ポリブチレンサクシネート / ポリ乳酸の各種混合比における伸びを示す。横軸は、混合樹脂全体に対するポリ乳酸の占める割合を重量 % で示す。また、縦軸は伸びを % Strain で示す。図中の点線で囲まれた部分 (混合比 10-45 ラクティ %, % Strain 200% 以上) は推奨範囲である。なお、伸び測定時の標線間距離は 50 mm である。

【図 2】 ポリブチレンサクシネート / ポリ乳酸 = 50/50 混合比における、モノフィラメントの断面偏光顕微鏡写真を示す。撮影はクロスニコル条件下、1/4 波長板を用いて行った。図中の橙色部分はポリブチレンサクシネート成分を、また、紫色部分はポリ乳酸成分を表す。

【図 3】 ポリブチレンサクシネート / ポリ乳酸におけるポリ乳酸粒子径と材料強度の関連を示す。横軸はポリ乳酸粒子径 ( $\mu\text{m}$ ) を、縦軸は引張強度 (MPa) を表す。

【図 4】 実施例 1 における横引き強度の測定規格を示す。ファスナーをかみ合わせたチェーンの状態、チェーンかみ合い方向に対して図のように一定速度 (300 mm/分) で、引張試験機を利用してテープを引っ張り抵抗を測定する。なお、クランプ幅は 25 mm である。